

# PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 07-135106

(43)Date of publication of application : 23.05.1995

51)Int.Cl.

H01F 1/24  
B22F 1/02  
C22C 1/04  
C22C 33/02  
H01F 27/255  
H01F 41/02

21)Application number : 06-150208

22)Date of filing : 30.06.1994

(71)Applicant : MITSUI PETROCHEM IND LTD

(72)Inventor : SHIGEMATSU SHIGETO  
SAKAI MITSURU  
SAITO JUN

30)Priority

Priority number : 05162791 Priority date : 30.06.1993 Priority country : JP

## 54) MAGNETIC CORE

57)Abstract:

PURPOSE: To provide a magnetic core having preferable magnetic characteristics and capable of low-temperature high-density molding.

CONSTITUTION: A powdery material composed of amorphous magnetic metal particles coated with oxide is compacted by compression molding in order to form a magnetic core. The compression molding is preferably carried out with heat. The amorphous metal may be Fe-B-Si or Fe-B-Si-C, which remains amorphous as a magnetic core. Fe-Al-Si-Nb-B may also be used; microcrystals precipitate on it when finally heated above the crystallization point. Preferable molding temperature ranges from crystallization temperature minus 100° C to minus 5° C and preferable pressure is 100 to 20000kg/cm.

## LEGAL STATUS

[Date of request for examination] 19.03.2001

[Date of sending the examiner's decision of rejection] 19.08.2003

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平7-135106

(43)公開日 平成7年(1995)5月23日

(51)Int.Cl. <sup>6</sup>	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
H 0 1 F 1/24				
B 2 2 F 1/02	E			
C 2 2 C 1/04	J			

H 0 1 F 1 / 24  
8123-5E 27 / 24 D

審査請求 未請求 請求項の数5 OL (全5頁) 最終頁に続く

(21)出願番号 特願平6-150208

(22)出願日 平成6年(1994)6月30日

(31)優先権主張番号 特願平5-162791

(32)優先日 平5(1993)6月30日

(33)優先権主張国 日本(J P)

(71)出願人 000005887

三井石油化学工業株式会社

東京都千代田区霞が関三丁目2番5号

(72)発明者 重松 茂人

千葉県袖ヶ浦市長浦字拓二号580番32三井

石油化学工業株式会社内

(72)発明者 酒井 充

千葉県袖ヶ浦市長浦字拓二号580番32三井

石油化学工業株式会社内

(72)発明者 斉藤 肇

千葉県袖ヶ浦市長浦字拓二号580番32三井

石油化学工業株式会社内

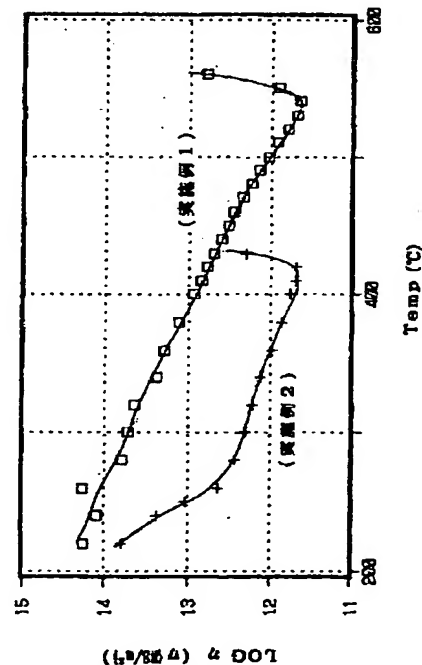
(74)代理人 弁理士 遠山 勉 (外1名)

(54)【発明の名称】 磁 心

(57)【要約】

【目的】 低温かつ高密度成形可能で、しかも磁気特性の優れた磁性金属／絶縁膜複合粉末成形体による磁心を提供する

【構成】 表面に酸化物材料からなる絶縁膜を形成した非晶質の磁性金属原料粉末を加熱しながら圧縮成形してこれを磁心とした。



## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 表面に酸化物材料からなる絶縁膜を形成した非晶質の磁性金属原料粉末を圧縮成形してなる磁心。

【請求項2】 前記圧縮成形を加熱下で行う請求項1記載の磁心。

【請求項3】 前記絶縁膜は、 $MFe_2O_4$  (MはNi, Zn, Cu, Mn, Mg, Fe, Co, Li)の中の少なくとも1種以上)で表されるスピネル型フェライト、 $MFe_{1-x}O_3$  (MはBa, Pb, Sr, Ca, Ni, La, Ag)の中の少なくとも1種以上)で表される六方晶フェライト、または $\gamma-Fe_2O_3$ 、 $CrO_2$ 等の磁性酸化物であることを特徴とする請求項1または2記載の磁心。

【請求項4】 前記絶縁膜はNi-Znフェライト、Ni-Cu-Znフェライト、Mn-Znフェライト、Mg-Cu-ZnフェライトまたはMn-Mgフェライト等のスピネル型ソフトフェライトであることを特徴とする請求項1または2記載の磁心。

【請求項5】 前記圧縮成形時の加熱温度は、 $100^\circ C$ 以上で前記非晶質金属の結晶化温度以下の温度であることを特徴とする請求項1または2記載の磁心。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【産業上の利用分野】本発明は、トランス・ノイズフィルタ・平滑チョーク等に用いる磁心に関し、特にスイッチング電源等のパワーエレクトロニクス機器に用いる、高周波において透磁率及び飽和磁束密度が大きく損失が小さい磁心に関するものである。

## 【0002】

【従来の技術】従来、スイッチング電源等に用いる高周波用磁心材料としては、電気抵抗が大きいために渦電流損失が小さく、高周波における透磁率の低下が小さいという理由から、フェライトを用いたものが多く使われてきた。

【0003】ところがフェライト材料は酸化物のフェリ磁性体であるため、飽和磁束密度の面では満足できるものではなかった。

【0004】一方硅素鋼・センダスト等に代表される磁性金属材料は、飽和磁束密度の点ではフェライト材料の2倍以上の値をもつ。ところがこれらの材料は電気抵抗がフェライト材料に比べる極端に小さく、高周波での使用に耐え得るものではなかった。

【0005】磁性金属材料の高飽和磁束密度という特長を生かし、電気抵抗を大きくしようとするものにたとえば特開平4-21739公報、特開平5-36514公報に示されているような金属/絶縁膜複合粉末成形体がある。これはセンダスト(FeSiAl合金)粉末の表面を電氣的絶縁の役割をもつ薄膜層で覆い、この絶縁膜を破壊することなく圧縮成形することにより、フェライ

ト材料の高電気抵抗と磁性金属材料の高飽和磁束密度を達成しようとするものである。

【0006】さらに前記従来技術では、絶縁膜としてフェライトを用いることにより、成形体の実効透磁率も大きくできることも述べられている。

## 【0007】

【発明が解決しようとする課題】ところが一般に磁性金属材料として用いられるセンダスト(FeSiAl合金)粉末や硅素鋼(FeSi合金)粉末は硬くて脆い特性を有しているため、圧縮成形を行う際には高温でのホットプレスが必須であり、かつその場合においても高密度成形が難しいという欠点を有していた。

【0008】さらに結晶の金属粉末を圧縮成形するため、格子歪が生じ、磁歪の影響で磁気特性が損なわれるという問題もあった。本発明は前記課題に鑑みてなされたものであり、低温かつ高密度成形可能で、しかも磁気特性の優れた磁性金属/絶縁膜複合粉末成形体による磁心を提供することを技術的課題とする。

## 【0009】

【課題を解決するための手段】前記目的を達成するため、本発明は下記のような構成とした。すなわち、表面に酸化物材料からなる絶縁膜を形成した非晶質の磁性金属原料粉末(以下、磁性金属/絶縁膜複合粉末と称することがある)を圧縮成形してこれを磁心とした。

【0010】なお、前記圧縮成形は加熱下で行うことが好ましい。

## 【0011】

【発明の具体的な説明】本発明の非晶質の磁性金属原料粉末としては、最終製品(磁心)となった段階でも非晶質状態を維持するものとしてFe-B-Si系、Fe-B-Si-C系、Fe-B-Si-Cr系、Fe-Co-B-Si系、Fe-Ni-Mo-B系等の非晶質磁性金属粉末が挙げられる。また、最終的には結晶化温度以上で熱処理することにより、微結晶が析出した状態になるものとしてFe-Al-Si-Nb-B系、Fe-Cu-Nb-Si-B系、Fe-Zr-B系、Fe-Ta-C系、Fe-Ta-N系、Fe-Nb-B系等の非晶質磁性金属粉末を例示できる。

【0012】本発明の非晶質金属粉末は通常以下の2つの方法によって製造することができる。第1の方法は、前記成分の金属溶湯を超急冷することにより直接非晶質金属粉末を得る方法である。具体的な製造方法としては、水アトマイズ法、ガスアトマイズ法、スプレー法、キャビテーション法、スパークエロージョン法、回転液中射出法等を例示できる。

【0013】第2の方法は、前記成分の金属溶湯を超急冷し非晶質金属薄帯あるいは非晶質金属フレークあるいは非晶質金属線等の非晶質金属を得た後、これを粉砕する方法である。この場合の非晶質金属薄帯あるいは非晶質金属フレークあるいは非晶質金属線等の製造方法とし

ては、単ロール法、双ロール法、遠心急冷法、回転液中紡糸法等を例示できる。

【0014】またこれら非晶質金属の粉碎は、媒体攪拌型ミル、振動ミル、ローラーミル、ジェットミル等により行うことができる。なお粉碎前に、この非晶質金属をその結晶化温度より低い温度で熱処理してもよい。このように熱処理することにより非晶質金属が脆化し、粉碎が行いやすくなる。

【0015】前記第1あるいは第2の方法で得られた非晶質金属粉末には、その表面に渦電流損失を低下させる目的で前記従来技術で説明したような電氣的絶縁膜を形成して複合粉末成形体とする。ところがこのような絶縁膜は非磁性材料でありしかも非晶質金属粉末の全表面に形成されているため、磁束方向にも非磁性の絶縁膜が存在することになり磁束の流れが妨げられ、複合粉末成形体の実効透磁率は急激に低下し、パワーエレクトロニクス機器の用途には利用不可能となる。したがって、この絶縁膜は、磁性体であることが望ましいことを本発明者は見出した。

【0016】ここで絶縁膜となる磁性をもつ電氣的絶縁体としては、 $MFe_2O_4$  (MはNi, Zn, Cu, Mn, Mg, Fe, Co, Liの中の少なくとも1種以上) で表されるスピネル型フェライト、 $MFe_{1-x}O_x$  (MはBa, Pb, Sr, Ca, Ni, La, Agの中の少なくとも1種以上) で表される六方晶フェライト、または $\gamma-Fe_2O_3$ 、 $CrO_2$ 等の酸化物を例示することができるが、特に成形体の磁気特性を良好にするという観点から、Ni-Znフェライト、Ni-Cu-Znフェライト、Mn-Znフェライト、Mg-Cu-Znフェライト、Mn-Mgフェライト等のスピネル型ソフトフェライトであることが好ましい。

【0017】またこれら磁性絶縁膜の製造法としては、絶縁膜構成金属元素を含んだ非晶質金属粉末を酸素ガス雰囲気中で熱処理し直接目的の酸化膜を形成する方法、絶縁膜構成金属(イオン)を含む溶液中に非晶質金属粉末を浸漬することにより金属(イオン)を吸着し、これを酸素ガス雰囲気中で熱処理することにより目的の酸化膜を形成する方法、絶縁膜構成金属の酸化物ゲルを調製し、非晶質金属粉末をこのゲル中に浸漬することにより金属酸化物ゲルを粉末表面に付着させ、これを酸素ガス中で熱処理することにより目的の酸化膜を形成する方法、絶縁膜構成金属イオンを含んだ溶液に非晶質金属粉末を浸し、酸化することにより粉末表面に目的の酸化膜を形成する方法等を挙げることができる。

【0018】なお磁性絶縁膜を形成する前に、非晶質金属粉末の表面酸化膜を除去する目的で水素等の還元性ガス中で結晶化温度以下の熱処理を行ってもよい。上記磁性金属/絶縁膜複合粉末の圧縮成形を行う際、本発明では結晶化温度近傍における非晶質金属の粘性流動による変形を利用する。したがって、急速加熱・急速冷却の成

形であることが望まれ、その方法としてはホットプレス法、放電プラズマ法、HIP法等を例示することができる。

【0019】なお、ここで結晶化温度とは、過冷却等により非晶質状態にある物質を加熱した場合に、物質構成原子の再配列が生じ、結晶化転移が起こる温度のことである。

【0020】成形温度および成形圧力は、用いる磁性金属/絶縁膜複合粉末によって変化するので一概に規定できないが、成形温度は、非晶質状態の粘性流動を利用するので非晶質磁性合金の結晶化温度以上に昇温してはならず、好ましくは $100^{\circ}\text{C}$ 以上でかつ磁性合金の結晶化温度以下の温度であり、特に好ましくは(結晶化温度 $-100^{\circ}\text{C}$ ) $\sim$ (結晶化温度 $-5^{\circ}\text{C}$ )の範囲である。

【0021】成形圧力は $100\sim 20,000\text{ kg/cm}^2$ であることが望ましい。これ以上の圧力では金型の耐久性に支障が生じ、これ以下の圧力では圧縮成形が困難になるためである。

【0022】また磁気特性が劣化するため、圧縮成形の際には結合材、潤滑材等の添加材は用いない方が望ましいが、必要な場合には、無機系として水ガラス、金属アルコキシド、セラミック超微粉末等を、有機系としてフェノール樹脂、エポキシ樹脂等を少量用いることもできる。

【0023】本発明の磁性金属粉末として微結晶材料を用いた際の結晶化熱処理は、圧縮成形後に真空中あるいはアルゴンガスもしくは窒素ガス等の不活性ガスあるいは空気等の酸化性ガス中で行う。この熱処理条件としては、熱処理温度として結晶化温度以上、熱処理時間としては、 $0.1\sim 10$ 時間程度、好ましくは $0.5\sim 5$ 時間程度である。

【0024】一方磁性金属粉末として非晶質材料を用いた際にも、歪み緩和による磁気特性の向上を目的として熱処理を行ってもよい。この場合、熱処理温度は結晶化温度以下で行う必要がある。熱処理雰囲気および時間は微結晶材料の場合と同様である。

【0025】以下実施例をあげて本発明をさらに具体的に説明する。

#### 【0026】

#### 【実施例】

(実験例1) 微結晶材料として用いられる $Fe_{80}Si_{10}Al_5Nb_5B_5$  (数値は原子%) 非晶質磁性金属の変形能について実験を行った結果について以下に示す。

【0027】まず片ロール法によって製造した上記合金の非晶質薄帯(幅 $2.8\text{ mm}$ 、厚さ $17\text{ }\mu\text{m}$ )を熱機械分析装置を用いて、加重 $50\text{ g}$ 、昇温速度 $10^{\circ}\text{C/min}$ の条件で歪測定を行った。この結果より熱膨張分を差し引いた非晶質金属の変形による正味の歪速度を求め、これより粘性係数 $\eta$ を算出した。この温度依存性を図1に示す。

【0028】温度の上昇とともに $\eta$ は $10^{11}$  NS/m<sup>2</sup>程度の値から $10^{11}$  NS/m<sup>2</sup>台の値まで大幅に減少し最小値をとった後、さらに温度が増加すると $\eta$ も増加する。 $\eta$ が最小値を示す温度は、昇温速度 $10^{\circ}\text{C}/\text{min}$ で行った示差熱分析による結晶化発熱ピークと良い一致を示し、これ以降の $\eta$ の急激な上昇は、磁性金属の非晶質からの結晶化の進行に対応する。

【0029】すなわちこの磁性金属合金は非晶質状態において温度の上昇とともに急激に変形しやすくなるが、その高い変形能はさらに温度が上昇し結晶化が起ると失われることがわかる。

【0030】この高い変形能を利用することにより、この温度近辺で高密度焼結を実現できることがわかる。

【0031】ここで示差熱分析とは、測定試料と基準物質（測定温度範囲内で熱的異常を示さない物質。本測定ではアルミナ粉末を用いた）を一定の温度上昇率で加熱し、両者の間に生じる温度差から試料の熱的性質を解析する方法であり、本実施例の測定ではセイコー電子工業株式会社製TG/DTA200を用いた。

【0032】（実験例2）非晶質材料として用いられる $\text{Fe}_{70}\text{Si}_{10}\text{B}_{20}$ （数値は原子%）非晶質薄帯について同様な歪測定を行った。結果を図1にあわせて示す。

【0033】本実験例2によれば、実験例1の場合と同様に結晶化温度近傍で粘性係数 $\eta$ は極小値をもち、この温度近傍での高い変形能を利用すれば、高密度焼結が可能となることがわかる。

【0034】（磁心の製造工程）次に、実験例1に説明した片ロール法を用いて、 $\text{Fe}$ 、 $\text{Si}$ 、 $\text{Al}$ 、 $\text{Nb}$ 、 $\text{B}$ を含有する溶湯からアルゴンガス1気圧雰囲気中で $\text{Fe}_{70}\text{Si}_{10}\text{Al}_{10}\text{Nb}_{10}\text{B}_{20}$ （数値は原子%）非晶質磁性金 \* 30

\* 属薄帯（幅2.8mm、厚さ $17\mu\text{m}$ ）を得た。

【0035】この非晶質磁性金属薄帯を結晶化温度以下の $350^{\circ}\text{C}$ 窒素ガスの存在下で、約1時間熱処理し脆化を行った。そして脆化処理した非晶質薄帯を媒体攪拌型ミルを用いて粉碎し粉末とした。得られた非晶質粉末を $400^{\circ}\text{C}$ 水素ガスの存在下で約1時間還元処理した後、 $\text{Ni-Zn-Fe}$ 酸化物ゲル（溶媒：エチレングリコール）に浸し、粉末表面に $\text{Ni-Zn-Fe}$ 酸化物ゲルを付着させた。この粉末を空气中 $450^{\circ}\text{C}$ で約3時間熱処理することにより非晶質粉末表面に $\text{Ni-Zn}$ フェライト磁性絶縁膜を形成した。

【0036】得られた $\text{Ni-Zn}$ フェライト/非晶質金属複合粉末を放電プラズマ法により、 $450^{\circ}\text{C}$ 、 $3000\text{kg}/\text{cm}^2$ の圧力で4分間圧縮成形を行い、外径 $\phi 20\text{mm}$ ×内径 $\phi 8\text{mm}$ ×高さ $5\text{mm}$ のリング状成形体を得た。このリング状成形体を合成樹脂からなるケースに収容して磁心とした。

【0037】以上の実施例からも明らかなように、磁性絶縁材料で覆われた非晶質状態を含む磁性金属粉末を用いることにより、低温で高密度焼結可能で、かつ高周波において磁気特性のきわめて優れた磁心材料を提供することが可能になる。

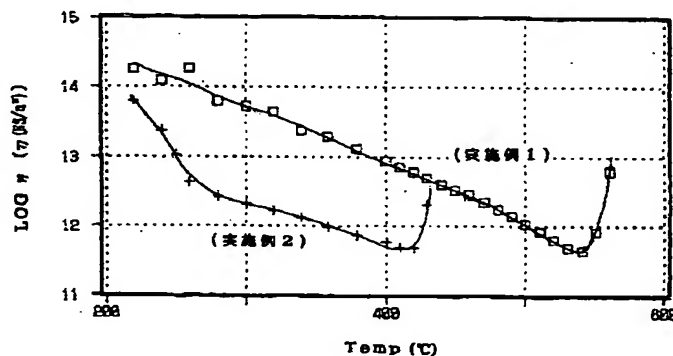
【0038】

【発明の効果】本発明によれば、低温で高密度焼結可能で、かつ高周波において磁気特性のきわめて優れた磁心材料を得ることができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】 実施例における $\text{FeSiAlNbB}$ 非晶質磁性金属及び $\text{FeSiB}$ 非晶質磁性金属の粘性係数 $\eta$ の温度依存性を示す図

【図1】



(5)

特開平 7-135106

フロントページの続き

(51)Int.Cl. <sup>6</sup>	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
C 2 2 C 33/02	J			
H 0 1 F 27/255				
41/02	D	8019-5E		C2